

優先特許権



本特許は、特許法第17条第1項第1号の発明に係るものである。
昭和49年10月13日
特許第297517号

特 許 願

(336019)

昭和49年10月13日

特許庁長官

審 査 官 堀 田 隆 夫

発 明 の 名 称

歯エナメル質に対する鉱物成分再補給方法及び組成物
歯エナメル質に対する鉱物成分再補給方法及び組成物

発 明 者

住 所 アメリカ合衆国オハイオ州、シンシナティ、
コーネルレイン、アベニュー、10244

氏 名 ロバート・ウィット、グラベンス・タナー

(ほか1名)

特許出願人

住 所 アメリカ合衆国オハイオ州、シンシナティ、イースト、
シタダス、ストリート、301

名 称 ザ・プロクター・エンド・ギャンブル・カンパニー
代 表 者

国 籍 アメリカ合衆国

代 理 人

(特許第100)
東京千代田区丸の内三丁目2番3号
(電話東京(21)3321 大代表)

1230 分 理 士 増 設 簿
(ほか3名)

明 細 書

発明の名称

歯エナメル質に対する鉱物成分再補給方法及び
組成物。

特許請求の範囲

次の成分を含むことを特徴とする、歯エナメル質に鉱物成分を再補給するための口腔用組成物：
(A)不溶性沈殿物を形成しうる陽イオンの源；
及び
歯酸陽イオンとで不溶性沈殿物を形成しうる陰イオンの源。

発明の詳細な説明

発明の背景

本発明は表面下の歯エナメル質に鉱物成分を再補給する (remineralization) のに有用な方法及び組成物に関する。より詳しくは、本発明はカルシウム塩の溶液とホスフェート塩の溶液のよう

① 日本国特許庁

公開特許公報

① 特開昭 49-94187

② 公開日 昭49.(1974)9.6

③ 特願昭 48-115251

④ 出願日 昭49.(1973)10.13

審査請求 未請求 (金8頁)

庁内整理番号

⑤ 日本分類

700/03

94 C1

な、各塩溶液に関するものであり、それらを引当いて歯エナメル質に付与すると表面下の歯エナメル質に鉱物成分を再補給することになる。

歯は歯エナメル質の表面下の鉱物成分損失 ("白点") として始まること及び鉱物成分を再補給すると歯の進行を遅くするかまたは阻止することが歯科分野で周知である。米国特許

3,679,360 号明細書には、リン酸カルシウムをゲル媒質から歯の表面に析出させることを目的とした方法が記載されている。しかしこの鉱物成分再補給法は幾つかの欠点を持っている。鉱物成分の再補給は歯の表面だけで終わるが、これに対して歯の初期腐蝕は歯表面下の鉱物成分損失である。リン酸塩の成長が望まれる歯の表面は (さらさらにする) ことによるようにして) 平滑処理されなければならない。また酸及び有機物を、歯表面の鉱物成分強化が起る間の暫定的な冠によつて補強しなければならない。

米国特許明細書に記載されている方法の欠点は、歯表面での鉱物成分再補給よりもむしろ歯

特開昭49- 94167(2)

表面下での鉱物成分再補給が生じる本発明によつて解決される。虫歯は歯エナメル質の表面下での鉱物成分消失として始まるので、歯表面下での鉱物成分再補給は、歯に対する何らかの水久的損傷被害が生ずる前に、虫歯の増事を阻止しかつ回復させる。本発明はエナメル質の予備処理、歯の裏付、歯はいぼろぼろになつた欠損物の除去を必要としない。更に、本発明は歯の保護習慣を現実的に促さる必要なしで場合よく実施される。

発明の要旨

望ましい沈殿物を用いて歯面下の歯エナメル質に鉱物成分を再補給することは、修復望ましい沈殿物の陰イオン源となりうる水溶性化合物を含む第一組成物、及び望ましい沈殿物の陰イオン源となりうる水溶性化合物を含む第二組成物を利用する方法によつて成就される。その方法は、(1)上記組成物の一つを、所望のイオンが鉱物成分の消失した歯の表面下に拡散するのに十分な時間の間歯の表面に付与する工程、その後、(2)他の組成物を該歯表面に付与し、それによつて該歯の組成物の

所望のイオンが鉱物成分の消失した歯の表面下に拡散して該歯の沈殿物を形成し、かくして鉱物成分の消失した歯の表面下に鉱物成分を再補給する工程、を含む。更に、鉱物成分再補給法において重金屬陰イオン及び有機物陰イオンを用いる場合には、形成される鉱物成分再補給沈殿物は元のエナメル質よりも鉱物成分消失を受けない。

陰イオン源液及び陰イオン源の濃度は0.005モル乃至1.0モルまたは塩の溶解限度であり、約0.05〜約6モルが好ましい。陰イオン源液に2種以上の陰イオンを用いてすよい。同様に、陰イオン源液に2種以上の陰イオンを用いてもよい。8例のように少ない引続いた付与の後に、1日毎に日に見る効果がある。それで、数回引続いて付与して最も有益な結果を達成することが企図される。

発明の具体的な説明

本発明は、反応して望ましい鉱物成分再補給沈殿物を形成する各イオンを生成するある種の可溶性塩類を引続いて付与することによつて歯面下の歯エナメル質に鉱物成分が再補給されるという発

見にある。その引続いた付与は二工程からなり、それら任意の順序で行なわれるが、下記の順序がわずかに好ましい。第一工程として、可溶性塩の反応物源液を鉱物成分の消失した歯表面下に最も近い歯表面と接触させておく。この第一反応物源液は、歯表面を流つて鉱物成分の消失した歯表面下に拡散する陰イオンから過剰される。

第二工程として、選択された陰イオンを含むある反応物源液を鉱物成分の消失した歯表面下に最も近い歯表面と接触させておく。その陰イオンは歯表面を流つて鉱物成分の消失した歯表面下に拡散し、そこで陰イオンは前もつて付与されている陽イオンと拡散して沈殿物を形成し、その沈殿物は歯組織と融合する。その結果として、歯の表面下に鉱物成分が再補給される。

その各塩源液の濃度は約0.005モル乃至約1.0モルまたは塩の溶解限度である。所望により過剰の塩も存在しうる。所望の陰イオンを含有している可溶性塩の濃度は所望の陽イオンを含有している水溶性塩の濃度と本質的に同じである。各工程に

おいて、鉱物成分の消失した歯の表面下への拡散を促進させるために、溶解の反応物が必要であるので、歯表面である公知はない。

塩源液と歯の表面との間の接触時間の長さは臨界的ではないが、イオンが歯の表面を流つて鉱物成分の消失した歯の表面下に拡散するのに十分な長さである必要がある。この拡散には少なくとも10秒必要であると考えられる。

各源液は沈殿反応の即発とも約2〜約10のpHを持つべきであり、すなわち歯では口腔環境に適合すべきである。そのイオンは溶液中ではやすつて結合して沈殿物を形成してはならず、歯の表面を流つて鉱物成分の消失した歯の表面下部分に拡散できなければならず、かつ歯の組織のイオンとで不溶性塩を形成できなければならぬ。その溶液及び不溶性沈殿物は好ましくは無色されていなく、また経口摂取される毒性水質を持つ。

本発明の広い範囲内には多数の沈殿物があるが、元のエナメル質よりも溶解性の小さい沈殿物を沈積させることによつて、元のエナメル質よりも耐

特開昭48- 94187(3)

無機成分の消失である。無機成分の再補給された歯の歯肉下を作ることができる。本発明で認められる無機成分再補給を重碳酸イオンまたは弗化物イオンのいずれかの存在下で行なうならば、その無機成分の再補給されたエナメル質は元のエナメル質よりも耐蝕成分消失性である。その酸イオンが存在する場合には、その無機成分の再補給されたエナメル質は既に耐蝕成分消失性である。重碳酸イオン及び弗化物イオンを含有する塩の各々の溶解の濃度は約0.005〜約1.0多であり、約0.005〜約0.1多が好ましい。

適当な重碳酸イオンの例はバリウム、ランタン、マンガン、鉛、鋳、亜鉛、インジウム、ジルニウム、鉄、セチウム、バナジウム、及びカドミウムである。インジウムが好ましい。

本発明の最も好ましい態様としては、無機成分再補給用酸イオン溶液は、カルシウムイオンを生じる可溶性カルシウム塩を約0.005〜約1.0多、好ましくは約1多と、インジウムイオンを生じる可溶性インジウム塩を約0.005〜約1.0多、好

ましくは約0.005〜0.1多とを含有する。無機成分再補給用酸イオン溶液はホスフェートイオンを生じる可溶性ホスフェート塩を約0.005〜約1.0多、好ましくは約1多と、弗化物イオンを生じる可溶性弗化物塩を約0.005〜約1.0多、好ましくは約0.005〜約0.1多とを含有する。

その生成反応物はインジウム及び弗化物イオンの混入したリン酸カルシウム、または水酸リン酸石、即ち自然の歯エナメル質成分である。この方法では無機成分の再補給されたエナメル質になるだけでなく、その無機成分の再補給されたエナメル質は元のエナメル質よりもその後の無機成分の消失に耐えるものである。

本発明の溶液に用いるのに適している可溶性弗化物及びインジウム塩としては弗化ナトリウム、弗化亜鉛、弗化ベタイン、弗化テトラアミン、弗化ヘキサアミン、塩化インジウム、炭酸インジウム、及び硝酸インジウムがあるが、これらに限定されるものではない。その他の所望の酸イオン及び塩イオンについて適当な塩は歯肉下には明

らかであろう。

好ましい不溶性沈殿物を与える酸イオンとしてはホスフェート、 $C_2O_4^{2-}$ 、炭酸、アシル酸、弗化物、フルオールホスフェート、弗化シリカ、セリブデート、スルフェート、タンクステート、 β -ヒドロキシセチレート、 α -タレート、ソルベート、 $C_2O_4^{2-}$ 、アルキルスルホネート、カーボネート、イオデート等がある。これら酸イオンの混合物が望ましい。

好ましい不溶性沈殿物を与える酸イオンはカルシウム、鉛、インジウム、鉛土、セチウム、マデネシウム、マンガン、カドミウム、アルミニウム、バリウム、ランタン、ウルコニウム、ストロンチウム、セシウム等である。これら酸イオンの混合物が望ましい。

無機成分再補給用の不溶性沈殿物を形成するこれらの酸イオン及び塩イオンは相当する可溶性塩の溶液から得られる。本発明で用いられる酸イオンの適当な可溶性塩としては炭酸の酸イオンの塩化物、硫酸塩及びグルコン酸塩がある。同時に、本

発明で用いられる酸イオンの適当な可溶性塩としてはナトリウム塩、カリウム塩、アンモニウム塩、及び亜鉛アンモニウム塩がある。

歯エナメル質に無機成分を再補給するのに用いられる多数の種々の酸イオン及び塩イオンは結合して多数の種々の沈殿物を形成する。最も好ましい沈殿物は少量のインジウム及び弗化物が混入しているリン酸カルシウム化合物である。下記の沈殿物は無機成分が補給用の好ましい沈殿物だけでなく、無機沈殿物を形成するのに必要な酸イオン及び塩イオンも示すものである。これら沈殿物のあるものは、まず原沈殿物を形成し、次いでその沈殿物を反応させて必要な沈殿物を形成させることによつて形成されることは当業者には理解されることである。例えば、まず水酸化物を形成させ、次いで更に反応させて相当する弗化物を形成させる。

好ましい沈殿物は次の通りである： $Ca_10H_2O_{10}$ ； $Ca_8H_2O_8$ ； $Zn_3H_2PO_4$ ； In_2PO_4 ；リン酸ランタン、リン酸セリウム、及びリン酸セチウム(II)の

特開昭49- 94187(4)

ようなリン酸土類金属；弗化ランタン、弗化セリウム；弗化プラセオジム、弗化ネオジム、及び弗化サマリウムのような弗化物土類金属；アルキル（ C_{12} ）スルホン酸マグネシウム；ステアリン酸マグネシウム；ステアリン酸カルシウム；ヨウ素酸カドミウム；水酸化カドミウム；リン酸カルシウム；ステアリン酸亜鉛；リン酸アルミニウム。

如記したように、上記沈殿物の陽イオンは相当する可溶性塩、例えば塩化物塩の溶液から容易に得られる。上記沈殿物の陰イオンは相当する可溶性塩、例えばナトリウム塩、カリウム塩またはアンモニウム塩の溶液から容易に得られる。

本発明で意図されるその他の沈殿物は次の通りである；弗化アルミニウム；水酸化アルミニウム；バリウム石けん；ステアリン酸バリウム；パルミチン酸バリウム；ミリステン酸バリウム；ラウリル酸バリウム；フルオールリン酸バリウム；ケイ酸化水素酸バリウム；モリブデン酸バリウム；リン酸バリウム（ $Ba_3(PO_4)_2$ 、 $BaHPO_4$ 、及び $Ba(H_2PO_4)_2$ の混合物）；硫酸バリウム；タン

グステン酸バリウム；8-ヒドロキシキノリン酸インゾウム；水酸化インゾウム；リン酸インゾウム；酒石酸ランタン；ソルビン酸ランタン；シユウ酸ランタン；酸化ランタン；タングステン酸ランタン；リン酸ランタン；8-ヒドロキシキノリン酸（オキシン）マグネシウム；エーデシルスルホン酸マグネシウム、ラウリルスルホン酸マグネシウム、ミリステルスルホン酸マグネシウム、セチルスルホン酸マグネシウム、及びノ-オクタデシルスルホン酸マグネシウムのようなアルキルスルホン酸マグネシウム；オレイン酸マグネシウム；ミリステン酸マグネシウム；パルミチン酸マグネシウム；ステアリン酸マグネシウム；ラウリン酸マグネシウム；炭酸マグネシウム；弗化マグネシウム；リン酸マグネシウム；リン酸アンモニウムマグネシウム；炭酸マンガン；水酸化マンガン；リン酸アンモニウムマンガン；水酸化ニッケル；ラウリン酸ニッケル；ミリステン酸ニッケル；パルミチン酸ニッケル；ステアリン酸ニッケル；（オルト）リン酸銅；シユウ酸第一銅；酒石酸銅

銅；ヒドロキシキノリン酸亜鉛；硫酸亜鉛；シユウ酸亜鉛；水酸化亜鉛；リン酸亜鉛（清濁は複雑な混合物）；リン酸アンモニウム亜鉛；水酸化ジルコニウム；リン酸ジルコニウム；炭酸カルシウム；モリブデン酸カルシウム；ケイ酸カルシウム；タングステン酸カルシウム；ラウリルスルホン酸カルシウム；ミリステルスルホン酸カルシウム；エーデシルスルホン酸カルシウム；ノ-オクタデシルスルホン酸カルシウム；オレイン酸カルシウム；ステアリン酸カルシウム；酒石酸カルシウム；アルミン酸カルシウム；水酸化カルシウム；リン酸アンモニウムカルシウム；リン酸トリカルシウム；リン酸ジカルシウム；モノフルオールリン酸カルシウム； Li_3PO_4 ； $MgHPO_4$ ； $Mg_2(PO_4)_3$ ； MgH_2PO_4 ；リン酸アルミニウム；オルトリン酸アルミニウム；リン酸カルシウム；リン酸亜鉛；リン酸ストロンチウム；リン酸インゾウム；リン酸銅；リン酸バリウム；リン酸亜ニセリウム； $As(OH)_3$ ； $In(OH)_3$ ； $Mg(OH)_2$ ； MoO_3 ； SiO_2 ； $SiO_2 \cdot xH_2O$ ； $Sn(OH)_2$ ；

$SrO \cdot xH_2O$ ； $Ti(OH)_4$ ； TiO_2 ； V_2O_5 ； WO_3 ；及び $Zn(OH)_2$ 。

沈殿成分再補給沈殿物の陰イオン成分及び陽イオン成分は引続いた様式で図の後面に引き添えなければならぬので、この要件を満たす抽出法を用いる必要がある。その沈殿物の各成分は、それぞれ1つの成分を含有している2種の別個の抽出ビヒクルによつて表面に引続いて引き添えられる。或いは、その抽出系は、両成分を含有しているが、それらを引続く様式で放出する1つのビヒクルからなつてゐることができる。

陽イオン成分が1万のビヒクル中にあり、陰イオン成分が10万のビヒクル中にある2ビヒクルの例はうがい剤-うがい剤；精製みがき-精製みがき；精製みがき-うがい剤；うがい剤-精製みがき；飲料-飲料、キャンディドロップ-キャンディドロップ；栄養物質-栄養物質；歯みがき粉-歯みがき粉等である。

各成分を引続いて放出させるためにある種の手段が提供されている1ビヒクル系の例としては、

特開第49- 94187(5)

各イオンが隔た時間で放出される速度を、
1成分が速く放出されるようにカプセル化されて
いる印面が、2つに区分されたビン；薬液
の量を待ち、その結果最初に1方のイオン成分が
放出され、次いで他の成分が放出される。1
方の成分が他方の成分の順に放出されるように作
られたデュニーンガム；1方の成分が他方の成分
の順に放出される速度が異なるが、これらに
調整されるものではない。

本発明は他の表面に直接引き出すことによつて
も実施される。各イオン成分は代表的には、塩酸
として、グルとして、チープまたはその他の物質
の物質によつて、或いは水質しめまたはかんじき
酸によつて付与される。

鉱物成分再補給液はその他の有用な成分、例
えば共存性の治療剤、起剤、甘味剤、着色剤、
香料、溶剤、防腐剤、または安定剤も含みう
る。そのような成分の例は米国特許第3,175,951
号明細書に記載されている。

本発明の要約である幾つかの口徑用組成物を以

下の各例に記載する。それらの例は本発明を更に
説明するためのものである。

例 1

各イオンがいない

成分	重量%
三塩化インジウム(28g 水 系)	1.400
塩化カルシウム	1.109
グリセリン、u.s.p.(米国薬局 方)	10.000
エタノール、190プルーフ、 u.s.p.	7.500
香料	0.170
ポリオキシエチレン(20)ソ ルビタンモノイソステアレート	0.050
サツカリンのナトリウム塩、 B.P.(米国国民医薬品集)	0.090
ホウ酸、u.s.p.	0.075
水酸化、A.C.R.(アメリカ化学 協会)	0.200

NaOH(10%水溶液)	0.400
FD&Cイエロー+5	
(FD&C Yellow + 5)(1g 錠剤)	0.140
蒸留水	78.866
	100.000

FD&C グリーン(Green) (1g 錠剤)	0.045
溶媒水	81.230
	100.000

例 2

各イオンがいない

成分	重量%
塩化ナトリウム	0.033
リン酸ジナトリウム	0.947
グリセリン、u.s.p.	10.000
エタノール、190プルーフ、 u.s.p.	7.500
香料	0.040
ポリオキシエチレン(20)ソ ルビタンモノイソステアレート	0.050
サツカリンのナトリウム塩、 B.P.	0.050
ホウ酸、u.s.p.	0.075

成分	重量%
リン酸ジナトリウム	3.620
塩化ナトリウム	0.200
香料(香料シリカゲル)	19.000
ソルビトール(水中30%)	75.000
グリセリン	1.000
ヒドロキシエチルセルロース	1.500
ケルトロール(多環型)	0.650
アルキル硫酸ナトリウム(水中 28%)	3.500
サツカリン	0.250
二酸化チタン	0.500
香料	0.050

特開 昭48— 94187(6)

着色剤	0.350
炭酸酸	2.385
水	残 余

着色剤	0.500
水	残 余
pH 3.5 になる量の炭酸	

陽イオン部のみがき

成 分	重量%
塩化カルシウム	5.000
三塩化インジウム (2.89 % 水溶液)	0.000
珪酸材 (沈降ノウミンホル ムアルデヒド縮合生成物)	2.7000
ソルビトール (水中3.5%)	2.4500
グリセリン	5.700
ヒドロキシエチルセルロ ース	1.300
グルトロール (多糖類)	0.600
アルキル硫酸ナトリウム (水中2.8%)	4.200
サツカリ	0.220
香 料	0.970

例 Ⅲ

多 層 錠 剤	
陽イオン部のみがき	
成 分	重量%
ソルビトール	1.75
マンニトール	3.75
炭 粉	1.36
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	4.7
I_2O_5	0.04
砂糖代用品 (ニューハウス (Nishaus))	1.2
香 料	1.17
着色剤	0.1
コーンシロップ	残 余

陰イオン部のみがき

成 分	重量%
ソルビトール	1.76
マンニトール	1.76
炭 粉	1.37
NaHPO_4	3.9
NaCl	0.4
砂糖代用品 (ニューハウス)	1.2
香 料	1.27
着色剤	0.1
コーンシロップ	残 余

サツカリ	0.29
珪酸材	残 余

陽イオン部のみがき

成 分	重量%
アルキル硫酸ナトリウム	1.00
リン酸ジナトリウム	3.82
炭化ナトリウム	0.20
クエン酸ナトリウム	1.50
香 料	1.50
サツカリ	0.29
珪酸材	残 余

例 IV

陽イオン部のみがき

成 分	重量%
アルキル硫酸ナトリウム	1.00
三塩化インジウム	0.0289
クエン酸ナトリウム	1.50
香 料	1.00

例 V

チニールインガム

陽イオン部のみがき

成 分	重量%
ガムベース	3.400
エステルガム30部	
クマロン樹脂45部	
炭酸ラテックス15部	

特開昭49— 94187(7)

バクフインワックス (M.P. =

82℃, 180°) 10部

砂 粒	50.00
コーンレコップ	18.00
TiO_2	0.0289
O_2C_2	5.00
クエン酸	1.00
香料	微 量

陽イオン部分

成 分	重量%
カハベース	36.00
エステルガム30部	
グマロン樹脂43部	
乾燥ラテックス15部	
バクフインワックス (M.P. = 82℃, 180°) 10部	
砂 粒	50.00
コーンレコップ	18.00
Na_2HPO_4	3.82
NaF	0.20

に記載の組成物：

(A)陽イオンの可溶性塩を含有している第一層液；及び

(B)該第一層液の陽イオンとで不溶性沈殿物を形成しうる陽イオンの可溶性塩を含有している第二層液。

以下記の要件を満たしている第III項に記載のキット：

(A)第一層液は可溶性カルシウム塩を約0.005～約10%含有しており、また

(B)第二層液は可溶性ホスフェート塩を約0.005～約10%含有している。

以下記の要件を満たしている第IV項に記載のキット：

(A)第一層液は可溶性インシウム塩を0.005～0.1%含有しており、また

(B)第二層液は可溶性弗化物塩を0.005～0.1%含有している。

以下記の2つの組成物：

(A)望ましい沈殿物の陽イオン類となりうる水溶

クエン酸

1.00

香 料

微 量

上記の任意の陽イオン組成物と上記の任意の陽イオン組成物との組合せも均いうる。上記の組成物を普通量の量で人間の口に用いる時に、沈殿物成分の消失した箇の表面下に組成成分が再補給され、それで生成した箇の組織は再び組成成分が消失することが少なくなる。カルシウム塩とインシウム塩との合計の濃度及びホスフェート塩と弗化物塩との合計の濃度は人間の口に用いた時にそれぞれ約2%及び約1%多である。

例 4

(A)の陽イオン類がい剤で口をゆすぎ、次いで(B)の陽イオン類がい剤で口をゆすぎ、各ゆすぎを約30秒間行なう。その陽イオン類がい剤—陽イオン類がい剤の連続を1日に2回、4日間行なう。

本発明の実施態様は次の通りである。

以下記のものからなる歯エナメル質に組成成分を再補給するための、キット形態の歯磨剤水の組成

性化合物を含む第一組成物；及び

(B)該望ましい沈殿物の陽イオン類となりうる水溶性化合物を含む第二組成物。

を利用して望ましい沈殿物で、組成成分の消失した箇の表面下に組成成分を再補給する方法において、次の工程を含む組成成分の再補給法：

(A)上記組成物の1つを、所望のイオンが組成成分の消失した箇の表面下に拡散するのに十分な時間の間該箇の表面に付与する工程；その後、当該の組成物を該箇の表面に付与し、それによつて該箇の組成物の所望のイオンが組成成分の消失した箇の表面下に拡散し、該箇の沈殿物を形成して組成成分の消失した箇の表面下に組成成分を再補給する工程。

(B)所望の陽イオン塩及び陰イオン塩である各化合物が各々の組成物中で約0.005～約10%の量で存在している第IV項に記載の方法。

(C)所望の陽イオン塩及び陰イオン塩である各化合物が各々の組成物中で約0.05～約5%の量で存在している第IV項に記載の方法。

特開 49— 94187(8)

の所望の陽イオンがカルシウム陽イオンとインジウム陽イオンとの混合物であり、また所望の陰イオンがホスフェート陰イオンと弗化物陰イオンとの混合物である第4項に記載の方法。

陽イオンがカルシウム、亜鉛、鉄、インジウム、希土類金属、マグネシウム、マンガン、カドミウム、アルミニウム、バリウム、タンタム、ジルコニウム、ストロンチウム、セシウムからなる群から選ばれたものである第4項に記載の方法。

陰イオンがホスフェート、 $U_9 \sim C_{18}$ 脂肪酸アレル酸、弗化物、フルオロホスフェート、弗化シリカ、セリブチート、スルフェート、ジソグステート、 α -ヒドロキシキノレート、タータレート、ソルベート、 $C_9 \sim C_{19}$ アルキルスルホネート、カーボネート、イオデードからなる群から選ばれたものである第4項に記載の方法。

製造をしい変換例が $CaWO_4$ 、 $CaWO_4$ 、 $ZnWO_4$ 、 PbO 、 $InPO_4$ 、リン酸ランタン、リン酸セリウム、及びリン酸サマリウム(4)のようなリン酸希土類金属；弗化ランタン、弗化セリウム；弗

化プラセオジム、弗化ネオジム、弗化サマリウムのような弗化希土類金属；アルキル(C_{18})スルホン酸マグネシウム；ステアリン酸マグネシウム；ステアリン酸カルシウム；ヨウ素酸カドミウム；水酸化カドミウム；リン酸カルシウム；ステアリン酸亜鉛；リン酸アルミニウムからなる群から選ばれたものである第4項に記載の方法。

出願人代理人 新 社 清

添 附 書 類 の 目 録

(1) 明 細 書	1 通
(2) 特 許 要 約	1 通
(3) 発 明 状 態 及 び 其 の 説 明	各 1 通 通 過 補 正
(4) 発 明 実 施 例 及 び 其 の 説 明	各 1 通 通 過 補 正

前記以外の発明者、特許出願人または代理人

発 明 者

住 所 アメリカ合衆国オハイオ州、シンシナチ、
ロンダ、レイン、8784

氏 名 ジョン、オーガスダス、グレイ、サード

代 理 人 (JPO 第 100)

〒100 東京都千代田区千代田 1-1-1

2202 弁 理 士 佐 藤 秀 吉

66 所

6707 小 野 寺 俊 彦

68 所

69